

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2005年8月25日 (25.08.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/078010 A1

(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C08J 5/18, B32B 27/36, B29C 55/12,  
G11B 5/73 // C08L 67:02, B29K 67:00, B29L 7:00

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 東レ株式  
会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒1038666  
東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002398

(72) 発明者; および

(22) 国際出願日: 2005年2月17日 (17.02.2005)

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 小林 淳  
(KOBAYASHI, Jun) [JP/JP]; 〒4110033 静岡県三島市  
文教町2-12-6-E 408 Shizuoka (JP). 西垣 泰男  
(NISHIGAKI, Yasuo) [JP/JP]; 〒4110033 静岡県三島  
市文教町2-12-3-A 64 Shizuoka (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(74) 代理人: 岩見 知典 (IWAMI, Tomonori); 〒5208558 滋  
賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社知的  
財産部内 Shiga (JP).

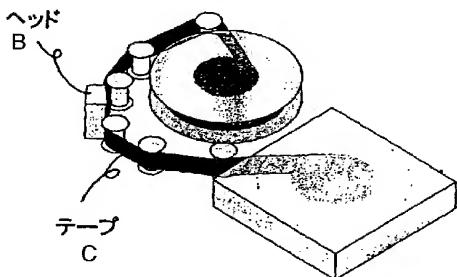
(26) 国際公開の言語: 日本語

[続葉有]

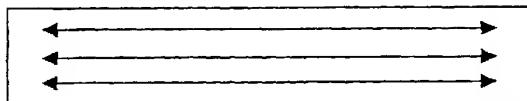
(54) Title: BIAXIALLY ORIENTED POLYESTER FILM

(54) 発明の名称: 二軸配向ポリエスチルフィルム

リニア記録方式  
A



ヘッド走行方向  
D



A... LINEAR RECORDING SYSTEM

B... HEAD

C... TAPE

D... DIRECTION OF HEAD TRAVELING

本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、磁気記録材料、電子材料、製版フィルム、昇華型リボン、包装材料に用いられるポリエスチルフィルムとして有用である。特に、本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、高密度磁気記録媒体、特にリニア記録方式である重層

(57) Abstract: A biaxially oriented polyester film of 8 to 15 cm<sup>-1</sup> microscopic Raman crystallization index (Ic) as measured in the direction of film thickness wherein the difference between Ic maximum and Ic minimum is 1 cm<sup>-1</sup> or less. There is further provided a biaxially oriented polyester film of -25 to 0 dB relative power (I<sup>10</sup><sub>TD</sub>) of space frequency 1/mm as measured along the width of at least one surface of polyester film having undergone heat treatment at 100°C for 24 hr. These biaxially oriented polyester films excel in microplanarity even after high-temperature storage or heat loading during processing. These biaxially oriented polyester films are useful as polyester films for use in a magnetic recording material, an electronic material, a plate making film, a sublimatic ribbon and a packaging material. In particular, these biaxially oriented polyester films are highly useful when employed as a base film for high-density magnetic recording medium, especially double layer metal coated digital recording medium according to linear recording system.

(57) 要約: 本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、フィルム厚み方向の顕微ラマン結晶化指数 Ic が、8 cm<sup>-1</sup> ~ 15 cm<sup>-1</sup>、Ic の最大値と最小値の差が、1 cm<sup>-1</sup> 以下である二軸配向ポリエスチルフィルムである。本発明のもうひとつの二軸配向ポリエスチルフィルムは、100°Cで24時間の熱処理を施したポリエスチルフィルムの少なくとも片面の幅方向における空間周波数 (1/mm) の Relative Power I<sup>10</sup><sub>TD</sub> が、-25 ~ 0 dB である二軸配向ポリエスチルフィルムである。本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、高温保管や加工時の熱負荷後も微小平面性が良好なフィルムである。

[続葉有]

WO 2005/078010 A1



(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,

BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

### 二軸配向ポリエステルフィルム

#### 技術分野

[0001] 本発明は、磁気記録材料、電子材料、製版フィルム、昇華型リボン、包装材料に用いられるポリエステルフィルムに関する。詳しくは、高密度磁気記録媒体、特にリニア記録方式である重層メタル塗布型デジタル記録媒体用ベースフィルムとして用いたときに有用な二軸配向ポリエステルフィルムに関する。

#### 背景技術

[0002] 近年、データストレージ用やデジタルビデオテープ用などの磁気記録媒体は、高密度で、高容量な磁気記録媒体となっている。一般にこのような磁気記録媒体に用いられる記録方式には、図1に示すようなヘリカル記録方式と、図2に示すようなリニア記録方式がある。ヘリカル記録方式は、2つのリールを持つカートリッジからテープを引き出して、高速回転する円筒型のヘッドをスキャンさせ、テープに対して斜めに読み書きを行う。リニア記録方式は、1つのリールを持つカートリッジからテープをヘッドに誘導し、テープに対して長手方向に一直線に読み書きを行う。リニア記録方式は、ヘリカル記録方式と比較して記録密度は低いが、テープのヘッドに対する巻き込みが緩やかであるため、テープへのダメージが少なく、データストレージ用として高い信頼性を持つ。

[0003] 最近このようなリニア記録方式を採用するLTO(Linear Tape Open)やSDLT(Super Digital Linear Tape)では、1巻で100GB以上の高容量を有するものが開発されている。

[0004] 高容量化には、一般に、トラック数増加、記録波長の短波長化、テープ長増大の3つの方法がある。

[0005] トラック数を多くすると1トラックの幅が狭くなるためテープ幅方向の寸法安定性の制御が重要となる。また、記録波長を短波長化した上で、十分な電磁変換特性を実現するためには表面平滑性が求められる。さらに、磁気記録媒体のカートリッジの大きさは基本的に変わらないので、1巻当たりのテープ長を長くするためにはテープの薄

膜化及びそれに伴う高強度化が必須である。これら3つの視点から、数多くの検討がなされてきた。特開2002-329312号公報、WO00-076749号公報、特開2003-67913号公報には、テープ幅方向の温度膨張係数や湿度膨張係数の最適化、添加粒子の小径化、延伸倍率アップによるベースフィルムの高強度化、金属補強による高強度化について、記載されている。しかし、これらの技術を用いても、1巻で100GB以上の高容量を有するリニア記録方式の磁気記録媒体用としては十分な電磁変換特性が得られなかつた。今までの結果、高温保管やフィルム加工時の熱負荷によるフィルム表面の微小な平面性の悪化が、磁気記録媒体の特性に影響を与えていることが明らかになつた。

[0006] 一般にリニア記録方式は、テープの巻き込みが緩やかで、ヘッドがテープを垂直方向に押す力が弱いために、ヘリカル記録方式の場合よりもスペーシングロスが発生しやすい。スペーシングロスは、ヘッドとテープの間にできるナノメートルオーダーの隙間であり、スペーシングロスが大きいと、電磁変換特性が悪化する。高容量とするため、磁気記録媒体の記録波長が $0.6\text{ }\mu\text{m}$ を下回るほど低波長化し、より一層の表面微細制御が求められている。しかし、公知の技術では依然として、温度膨張係数、湿度膨張係数、強度、結晶化度といったフィルム全体の平均値を表す物性で検討されている。温度膨張係数、湿度膨張係数、強度、結晶化度の特性では、現在課題とする微小なレベルでの平面性の制御はできなかつた。

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、上述の問題に対し、フィルム厚み方向の顕微ラマン結晶化指数や顕微ラマン結晶化指数の最大値と最小値の差などをある特定の範囲に制御することにより、高温保管やフィルム加工時の熱負荷によるフィルム表面の微小平面性の悪化を防止できるフィルム、特にリニア記録方式の高密度磁気記録媒体に有用なフィルムを提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0008] 本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、フィルム厚み方向の顕微ラマン結晶化指数Icが、 $8\text{cm}^{-1}$ ～ $15\text{cm}^{-1}$ 、Icの最大値と最小値の差が、 $1\text{cm}^{-1}$ 以下である二軸配

向ポリエステルフィルムである。

[0009] さらに、本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、100°Cで24時間の熱処理を施したポリエステルフィルムの少なくとも片面の幅方向における空間周波数10(1/mm)のRelative Power  $I_{TD}^{10}$  が、-25~-0dBである二軸配向ポリエステルフィルムである。

## 発明の効果

[0010] 本発明により、高温保管や加工時の熱負荷後も微小平面性が良好なフィルムが得られる。

## 図面の簡単な説明

[0011] [図1]図1は、一般的なヘリカル記録方式の概略図である。

[図2]図2は、一般的なリニア記録方式の概略図である。

## 発明を実施するための最良の形態

[0012] 本発明の第1の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、フィルム厚み方向における顕微ラマン結晶化指数Icが、 $8\text{--}15\text{cm}^{-1}$ である。フィルム厚み方向における顕微ラマン結晶化指数Icは、好ましくは $10\text{--}14.5\text{cm}^{-1}$ 、更に好ましくは $12\text{--}14\text{cm}^{-1}$ である。顕微ラマン結晶化指数は、フィルムの結晶性をミクロン単位で分析することが可能である。顕微ラマン結晶化指数の値が小さいほど構造が安定していることを示す。Icが $15\text{cm}^{-1}$ より大きいと構造が安定せず、熱負荷による収縮が発生し微小平面性が悪化する。一方、Icが $8\text{cm}^{-1}$ より小さくなるまで構造を安定化させるためには延伸倍率をかなり大きくし、熱固定温度を上げる必要があり、破れが頻発し生産上、問題がある。

[0013] 本発明の第1の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、厚み方向のIcの最大値と最小値の差が、 $1\text{cm}^{-1}$ 以下である。厚み方向のIcの最大値と最小値の差は、好ましくは、 $0.8\text{cm}^{-1}$ 以下、さらに好ましくは $0.5\text{cm}^{-1}$ 以下である。最大値と最小値の差が $1\text{cm}^{-1}$ より大きな場合は、熱負荷時のフィルム厚み方向における微小な熱収縮度合いが揃わず、フィルム表面の微小平面性が悪化する。

[0014] 本発明の第1の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、熱負荷時の収縮ムラを防ぐ観点から、フィルム平面方向の顕微ラマン結晶化指数の最大値と最小値の差が、1

cm<sup>-1</sup>以下が好ましく、より好ましくは0.8cm<sup>-1</sup>以下、更に好ましくは0.5cm<sup>-1</sup>以下である。

[0015] 本発明の第1の態様の特徴は、従来技術で用いてきた熱収縮率やヤング率のようにマクロな測定法では、解析が困難であった、リニア記録方式におけるスペーシングロスや電磁変換特性悪化という課題が、非常にミクロな測定である顕微ラマン結晶化指数により表現できることを見出したことがある。従って、熱収縮率やヤング率が同じでも顕微ラマン結晶化指数が上述の範囲を超えるものでは効果は得られない。

[0016] 本発明の第2の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、100°Cで24時間の熱処理を施したポリエステルフィルムの少なくとも片面の幅方向における空間周波数10(1/mm)のRelative Power I<sup>10</sup><sub>TD</sub>が、-25~-0dBである二軸配向ポリエステルフィルムである。片面の幅方向における空間周波数10(1/mm)のRelative Power I<sup>10</sup><sub>TD</sub>は、好ましくは-20~-1dB、更に好ましくは-15~-5dBである。Relative Powerは、1nm<sup>2</sup>の表面うねりを0dBと表記するよう解析ソフト上基準化された値であり、値がプラス側に大きいほどフィルム表面の微小平面性が悪いことを示す。微小平面性を決定するフィルム表面のうねりは、大きく2種類に分けられ、100 μmレベルの長波長のものと10 μmレベルの短波長のものが存在する。幅方向に存在する100 μmレベルの長波長のうねりの強度I<sup>10</sup><sub>TD</sub>が+5dBよりも大きいと長波長のうねりが強くなり過ぎ、スペーシングロスにより電磁変換特性が悪化しやすい。I<sup>10</sup><sub>TD</sub>が小さいほど長波長のうねりが少なくなり好ましいが、熱負荷による微小なうねりの発生は避けられず、I<sup>10</sup><sub>TD</sub>は、実質的には-25dB以上の値である。

[0017] また、空間周波数10(1/mm)の強度により表される100 μmレベルの長波長のうねりと、空間周波数200(1/mm)により表される5 μmレベルの短波長のうねりの強度差I<sup>10~200</sup><sub>TD</sub>が5~-20dBであると、本発明の効果がより一層顕著となるので好ましい。I<sup>10~200</sup><sub>TD</sub>は、更に好ましくは、6~-18dBである。空間周波数200(1/mm)で表される波長5 μmレベルの短波長のうねりはフィルムに添加される粒子径と強い相関があり、I<sup>10~200</sup><sub>TD</sub>が20dBよりも大きい時は、フィルム表面では添加粒子により形成される短波長のうねりよりも、100 μmレベルの長波長のうねりが支配的であることを示している。この状態では、テープとした場合にスペーシングロスが発生し電磁変換特性が悪化

する場合がある。逆に、 $I_{TD}^{10-200}$  が5～20dBの場合には、添加粒子径・添加量に応じた突起が適切に形成されており、スペーシングロスが発生しにくく、より好ましい。一方で、熱負荷によりごく小さな長波長のうねりが発生することは現時点では避けられず、実質的に $I_{TD}^{10-200}$  は5dB以上の値となる。

[0018] 本発明の第2の態様の特徴は、熱処理後フィルムの微小平面性を決定する長波長や短波長のうねりを空間周波数及び強度により明確に定義していることにある。それにより、従来技術で用いてきたWRaのように長波長や短波長のうねりを合計したマクロな値では説明が困難であった高密度のリニア記録方式磁気記録媒体におけるスペーシングロス及び電磁変換特性悪化という課題の改善をねらったものである。従って、WRaが同じでも $I_{TD}^{10}$  が大きいものは本発明の効果が得られない。

[0019] 本発明の第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、好ましくは、ポリエステルフィルムの長手方向のヤング率と幅方向のヤング率の和は、11,000～15,000MPaである。長手及び幅方向のヤング率の和は、より好ましくは、11,500～14,000MPa、更に好ましくは12,000～13,000MPaである。ヤング率の和が11,000MPaよりも小さいと、強度不足のためヘッド当たりが弱く、スペーシングロスを発生する場合がある。一方、15,000MPaよりも大きくするためには延伸倍率をかなり大きくする必要があり、破れが発生する場合がある。

[0020] 本発明の第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエステルフィルムの長手の熱収縮率と幅方向の熱収縮率の和は、好ましくは、3.0%以下、より好ましくは2.5%以下である。熱収縮率の和が3.0%よりも大きいと高温保管、あるいは熱負荷時のフィルム収縮が激しく、微小平面性が悪化しやすくなる場合がある。リニア記録方式は、フィルム幅方向に張力がほとんどかかりない。従ってテープ幅方向の収縮及びそれに伴う微小平面性悪化を防止するため、幅方向の熱収縮率は0.0～1.0%に收めることが好ましい。幅方向の熱収縮率は弛緩処理等の公知の方法により適宜調整することができる。

[0021] 本発明における第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエステルフィルムのポリエステルは、分子配向により高強度フィルムとなるポリエステルであれば特に限定しない。本発明におけるポリエステルフィルムは、主としてポリエチレンテレフタレ

ト、ポリエチレン-2, 6-ナフタレートからなることが好ましい。本発明におけるポリエステルフィルムは、特に好ましくは、クリープ特性が良好であるポリエチレンテレフタレートである。エチレンテレフタレート以外のポリエステル共重合体成分としては、例えばジエチレングリコール、プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、ポリエチレングリコール、p-キシリレングリコール、1, 4-シクロヘキサンジメタノールなどのジオール成分、アジピン酸、セバシン酸、フタル酸、イソフタル酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸などのジカルボン成分、トリメリット酸、ピロメリット酸などの多官能ジカルボン酸成分、p-オキシエトキシ安息香酸などが使用できる。

[0022] 本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、単層でも2層以上の積層構造であっても良い。本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、磁気記録媒体として使用した時に磁性層を塗布する層(A)と反対側の層(B)の表面突起形成を容易に制御できるため、2層構造が好ましい。

[0023] 2層構造の二軸配向ポリエステルフィルムの層(A)の、非接触式3次元粗さ計を用いて測定した表面粗さWR<sub>a</sub><sup>A</sup>は、0. 2~6nmが好ましく、より好ましくは0. 5~4nmである。WR<sub>a</sub><sup>A</sup>を0. 2nmより小さくすると、ヘッドとテープの滑りが悪化する場合がある。6nmを超えると表面が粗くなり過ぎ、高密度磁気記録媒体用として十分な電磁気変換特性が得られない場合がある。一方、反対面の層(B)の表面粗さWR<sub>a</sub><sup>B</sup>は1~10nmが好ましく、より好ましくは、3~8nmである。1nmよりも小さいとフィルムの巻き取り中にしわなどが入り、巻き姿が不良となる場合がある。一方、WR<sub>a</sub><sup>B</sup>が10nmよりも大きくなると、表面が粗くなり過ぎるためフィルムロールとして巻き取った際、磁性層を塗布する層(A)に転写するなどの悪影響を及ぼしやすくなる場合がある。

[0024] 次に、上記表面粗さを満足するためには、層内に不活性粒子を添加することが好ましく、本発明において層(A)に用いられる不活性粒子Iは、平均粒径dIは好ましくは0. 04~0. 30 μm、好ましくは0. 05~0. 10 μmで、含有量は好ましくは0. 001~0. 30重量%、より好ましくは0. 01~0. 25重量%である。高密度磁気記録用媒体においては、平均粒径が0. 30 μmよりも大きな粒子を用いると、電磁変換特性が悪化する場合がある。

[0025] 2層構造のポリエステルフィルムにおいて、層(B)の厚みtBは、好ましくは0. 1~2

. 0  $\mu$  mであり、より好ましくは0. 2～1. 5  $\mu$  mである。この厚みが、0. 1  $\mu$  mよりも小さくなると粒子が脱落しやすくなり、2. 0  $\mu$  mよりも大きくなると添加粒子の突起形成効果が減少する場合がある。

[0026] 2層構造のポリエステルフィルムにおいて、層(B)に含まれる粒子は1種類であっても2種類以上であってもよい。ポリエステル層(B)の積層厚みtBと層(B)に添加する最も大きい不活性粒子IIの平均粒径dIIの比(tB/dII)は、好ましくは0. 3以上1. 0未満、より好ましくは0. 4以上0. 8未満である。tB/dIIが1. 0以上であるとB層表面が粗くなりすぎ、磁性層を塗布する面へ転写して常温時でも、微小平面性が悪化する場合がある。不活性粒子IIの平均粒径dIIは、好ましくは、0. 3  $\mu$  m～1. 0  $\mu$  mで、より好ましくは0. 4  $\mu$  m～0. 9  $\mu$  mである。不活性粒子IIの含有量は、好ましくは、0. 002重量%～0. 10重量%、より好ましくは0. 005～0. 05重量%である。不活性粒子IIIの平均粒径は、粒子IIよりも小さいことが好ましい。不活性粒子IIIの平均粒径は、好ましくは、0. 1  $\mu$  m～0. 5  $\mu$  m、より好ましくは0. 2  $\mu$  m～0. 4  $\mu$  mである。不活性粒子IIIの含有量は、好ましくは、0. 1重量%～1. 0重量%、より好ましくは0. 2～0. 4重量%である。

[0027] 2層構造のポリエステルフィルムにおいて、層(A)および層(B)に含まれる不活性粒子は、球状シリカ、ケイ酸アルミニウム、二酸化チタン、炭酸カルシウムなどの無機粒子、またその他有機系高分子粒子としては、架橋ポリスチレン樹脂粒子、架橋シリコーン樹脂粒子、架橋アクリル樹脂粒子、架橋スチレンーアクリル樹脂粒子、架橋ポリエステル粒子、ポリイミド粒子、メラミン樹脂粒子等が好ましい。これらの1種もしくは2種以上を選択して用いる。

[0028] 2層構造のポリエステルフィルムにおいて、層(A)および層(B)に含まれる不活性粒子は、粒子形状・粒子分布は均一なものが好ましく、体積形状係数は、好ましくは、 $f=0. 3-\pi/6$ であり、より好ましくは $f=0. 4-\pi/6$ である。体積形状係数fは、次式で表される。

$$f = V/Dm^3$$

ここでVは粒子体積( $\mu$  m<sup>3</sup>)、Dmは粒子の投影面における最大径( $\mu$  m)である。

[0030] なお、体積形状係数fは、粒子が球の時、最大の $\pi/6 (=0. 52)$ をとる。必要に応

じて濾過などを行うことが好ましい。中でも、球状シリカは、単分散性に優れ、突起形成を容易に制御でき、本発明の効果がより良好となるため好ましい。また必要に応じて、地肌補強の観点から、一次粒径が0.005～0.10 μm、好ましくは0.01～0.05 μmの $\alpha$ 型アルミナ、 $\gamma$ 型アルミナ、 $\delta$ 型アルミナ、 $\theta$ 型アルミナ、ジルコニア、シリカ、チタン粒子などから選ばれる不活性粒子を表面突起形成に影響を及ぼさない範囲で含有してもよい。

[0031] 本発明の第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、フィルムの長手方向のヤング率および幅方向のヤング率がそれぞれ3500～10000MPaであることが好ましい。フィルムの長手方向のヤング率および幅方向のヤング率者の比(長手／幅)が、0.7～2.5が好ましく、より好ましくは、1.2～2.4、更に好ましくは1.5～2.3である。長手方向のヤング率および幅方向のヤング率の比(長手方向／幅方向)が、0.7よりも小さくなると、長手方向に張力がかかった時の幅方向の寸法変化が大きくなるためにトラックズレが発生する場合がある。ヤング率の比を2.0よりも大きくするためには長手方向にかなり大きな延伸倍率をかける必要があり、フィルム製膜時に破れが頻発する場合がある。

[0032] 一般に、リニア記録方式においては、トラックずれを防止する観点から長手方向に張力がかかったときの幅方向の寸法変化率が小さいことが好ましい。フィルムの長手方向に32MPaの荷重をかけ、温度49°C、湿度90%RHで72hr処理した時、処理前後の幅方向の寸法変化が-0.40～0%が好ましく、より好ましくは-0.30～-0.10%である。-0.35%よりも小さいと、磁気テープとして使用した際トラックずれが発生する場合がある。長手方向の強度が大きいほど幅方向の寸法変化率は小さくなる傾向があり、好ましくは長手方向のヤング率は5,000MPa以上、更に好ましくは6,000MPa以上である。しかし、長手方向のヤング率が10,000MPaよりも大きくなると、フィルム製膜時の延伸倍率が高くなり、フィルム破断が多発し、製品歩留まりが著しく悪くなる場合がある。一方、長手方向の強度が3,500MPaよりも小さくなると、磁気テープとした時に十分な強度が得られないことがある。

[0033] 本発明の第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエステルフィルムは、フィルムの幅方向の温度膨張係数は、好ましくは、 $-10 \times 10^{-6}$ ～ $20 \times 10^{-6}$ /°Cであり、

より好ましくは、 $-5 \times 10^{-6} \sim 15 \times 10^{-6}$  / °Cである。更にフィルム幅方向の湿度膨張係数は、好ましくは、 $0 \sim 20 \times 10^{-6}$  / %RH、さらに好ましくは、 $5 \times 10^{-6} \sim 15 \times 10^{-6}$  / %RHである。温度膨張係数及び湿度膨張係数がこの範囲を超えるとデータ書き込み時とデータ読み取り時の温度差や湿度差が大きい場合、テープに書き込まれた磁気情報を固定ヘッドが正しく読みとることができないことがある。温湿度環境の変化があってもデータを正しく読みとるためにには各膨張係数を上記範囲におさめることが好ましい。

[0034] 本発明の第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエスチルフィルムは、本発明の効果を阻害しない範囲で、少なくとも片面に水溶性塗剤、あるいは有機溶剤系の塗剤を塗布することにより易接着層を設けても良い。

[0035] 本発明の第1の態様、および、第2の態様の二軸配向ポリエスチルフィルムに用いられるポリエスチルフィルムの厚さは、高容量化に伴い薄膜化が進んでおり、 $2.0 \sim 7.0 \mu m$ が好ましく、より好ましくは $4.0 \sim 6.5 \mu m$ である。 $7.0 \mu m$ よりも厚いとカセットに入るテープ長が短くなり、十分な記録容量が得られない場合がある。ポリエスチルフィルムの厚さが、 $2.0 \mu m$ よりも薄いとテープとした時に十分な強度が得られない場合がある。

[0036] 次に、本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムの好ましい製造方法について説明する。

[0037] まず、ポリエスチルに不活性粒子を含有させる方法は、例えばジオール成分であるエチレングリコールに不活性粒子Iを所定割合にてスラリーの形で分散させ、このエチレングリコールスラリーをポリエスチル重合完結前の任意段階で添加する。ここで、粒子を添加する際には、例えば、粒子を合成時に得られる水ゾルやアルコールゾルを一旦乾燥せることなく添加すると粒子の分散性が良好であり、滑り性、電磁変換特性を共に良好とすることができる。また、粒子の水スラリーを直接所定のポリエスチルペレットと混合し、ベント方式の2軸混練押出機に供給しポリエスチルに練り込む方法も本発明の効果に有効である。粒子の含有量を調節する方法としては、上記方法で高濃度の粒子マスターを作つておき、それを製膜時に粒子を実質的に含有しないポリエスチルで希釈して粒子の含有量を調節する方法が有効である。

[0038] 上記の方法で得られたポリエステルのペレットを、所定の割合で混合し、乾燥したのち、公知の溶融積層用押出機に供給し、ポリマーをフィルターにより濾過する。非常に薄い磁性層を塗布する高密度磁気記録媒体用途においては、ごく小さな異物も磁気記録欠陥であるDO(ドロップアウト)の原因となるため、フィルターには、例えば、 $1.5 \mu m$ 以上の異物を95%以上捕集する高精度のものを用いることが有効である。続いてスリット状のスリットダイからシート状に押し出し、キャスティングロール上で冷却固化せしめて未延伸フィルムを作る。すなわち、1から3台の押出機、1から3層のマニホールドまたは合流ブロック(例えば矩形合流部を有する合流ブロック)を用いて必要に応じて積層し、口金からシートを押し出し、キャスティングロールで冷却して未延伸フィルムを作る。この場合、背圧の安定化および厚み変動の抑制の観点からポリマ流路にスタティックミキサー、ギヤポンプを設置する方法は有効である。

[0039] 延伸方法は、逐次二軸延伸であっても同時二軸延伸であってもよい。

[0040] 同時二軸延伸においては、延伸時にフィルムとロールが接触することがないため、フィルム表面の局所的な加熱が発生しにくく、顕微ラマン結晶化指数を制御しやすいため、延伸方法として、より好ましい。

[0041] 未延伸フィルムを、まず長手および幅方向に延伸温度は、例えば、80～130°C、好ましくは85～110°Cで同時に延伸する。延伸温度が80°Cよりも低くなるとフィルムが破断しやすく、延伸温度が130°Cよりも高くなると磁気記録媒体として用いた時に十分な強度が得られない場合がある。また、延伸ムラを防止する観点から、トータル倍率は、例えば、4～20倍、好ましくは6～15倍である。延伸倍率が4倍よりも小さいと本発明の対象とする高密度磁気記録媒体用として必要十分な強度が得られにくい場合がある。一方、倍率が20倍よりも大きくなると、フィルム破断が起こりやすく、安定したフィルムの製造が難しい場合がある。高密度磁気記録媒体に必要な強度を得るために、好ましくは、温度140～200°C、より好ましは160～190°Cで長手方向及び／又は幅方向に、再度延伸を行う。また、高密度磁気記録媒体に必要な強度を得るために、好ましくは、1.2～2.0、より好ましくは1.3～1.7倍で再度延伸を行う。その後、例えば、205～235°C、好ましくは、210～220°Cで、例えば、0.5～20秒、好ましくは、1～15秒熱固定を行う。熱固定温度が205°Cよりも低いとフィルムの

結晶化が進まないため構造が安定せず、高温保管や熱負荷時の熱収縮により微小平面性悪化を引き起こす場合がある。一方、235°Cよりも大きくすると、ポリエステル非晶鎖部分の緩和が進み、ヤング率が小さくなる場合がある。また本発明の目的を達成するためには、フィルム上下の温度差が、例えば、20°C以下、好ましくは、10°C以下、更に好ましくは5°C以下である。フィルム上下での温度差が20°Cよりも大きいと、厚み方向での顕微ラマン結晶化指数が均一にならず、熱負荷時に微小平面性の悪化を引き起こす場合がある。

[0042] 同時二軸延伸では、ロールによる接触加熱とは異なり、高温空気によってのみフィルムが加熱されるため局所的な加熱は生じにくい。一方で、同時二軸延伸は最初の延伸温度である90°C前後の温度から熱固定温度である220°Cまでのゾーンが全て長手方向につながっているため、随伴気流など高温空気の自由な流れによりフィルム上下や幅方向に温度差が発生しやすい延伸方法である。温度差を低減する方法としては特に限定されないが、温度の異なるゾーンの間に高温空気の自由な流れを抑制するシャッターなどの設備を設けることが有効である。特に、本発明の特徴とする顕微ラマン結晶化指数のばらつきを抑えたフィルムを作成するためには、フィルムとシャッターの隙間は、例えば、1～250mm、好ましくは2～100mm、更には3～50mmであることが好ましい。隙間が1mmよりも小さいとフィルムがシャッターに接触し破れる場合がある。隙間が、250mmよりも大きいと顕微ラマン結晶化指数のばらつきが大きくなり微小平面性が悪化する場合がある。フィルムとシャッターが接触しないようにするためには、ノズルから吹き出す風速を適宜調整することが有効である。

[0043] 一方、本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、逐次延伸を用いて製造することもできる。逐次延伸の場合、最初の長手方向の延伸が重要であり、延伸温度は、例えば、90～130°C、好ましくは100～120°Cである。延伸温度が90°Cよりも低くなるとフィルムが破断しやすく、延伸温度が130°Cよりも高くなるとフィルム表面が熱ダメージを受ける場合がある。また、延伸ムラ、及びキズを防止する観点からは、延伸は2段階以上に分けて行うことが好ましく、トータル倍率は、例えば、2.5～3.5、好ましくは、2.8～3.3倍である。延伸倍率が、2.5倍よりも小さいと磁気記録媒体用として必要な強度が得られにくい場合がある。一方、倍率が3.5倍よりも大きくなると、フィル

ムにキズが発生しやすいため磁気記録媒体用として使用が難しいばかりでなく、再縦延伸時にフィルムが破断する場合がある。

[0044] さらに、延伸ロールとしては、表面の粗さなどを制御しやすい非粘着性のシリコーンロールが好ましい。従来技術のようにセラミックスやテフロン(登録商標)更には金属のロールを用いた場合には、粘着によりフィルム表面のみが局所的に加熱され、フィルム表面と内部との顕微ラマン結晶化指数にばらつきが発生する場合がある。さらに、延伸ロールの表面粗さRaは、例えば、0. 005～1. 0  $\mu\text{m}$ 、好ましくは、0. 1～0. 6  $\mu\text{m}$ である。Raが、1. 0  $\mu\text{m}$ よりも大きいと延伸時ロール表面の凸凹がフィルム表面に転写する場合がある。Raが、0. 005  $\mu\text{m}$ よりも小さいとロールとフィルム地肌が粘着し、フィルムが熱ダメージを受けやすくなる場合がある。表面粗さを制御するためには研磨剤の粒度、研磨回数などを適宜調整することが有効である。さらに、延伸部におけるロールとフィルムのトータルの接触時間は、例えば、0. 1秒以下、好ましくは0. 08秒以下にすることがフィルムを製造する上で特に有効である。ロールとフィルムの接触時間が0. 1秒よりも大きくなると、延伸ロールの熱によりフィルム表面のみが局所的に加熱され、フィルム内部との間の顕微ラマン結晶化指数にばらつきが発生、引いては熱負荷時の微小平面性悪化を引き起こす場合がある。ここで接触時間とは、フィルムと延伸ロールの接触距離をロール入りのフィルム速度で除した時間であり、延伸が複数のロールわたって行われる場合、それらの総和時間である。接触時間を短くする方法としては、ロールに抱きつかせて延伸する方法でも可能であるが、例えばフィルムを延伸ロールに巻き付けず、ニップロール間でのみ平行に延伸することが特に有効である。

[0045] 逐次延伸では、その後、好ましくは、85～140°C、より好ましくは、90～110°Cで幅方向に、好ましくは、2. 5～4. 5倍、より好ましくは3. 0～3. 5倍延伸する。かかる温度、倍率範囲をはずれると延伸ムラあるいはフィルム破断などの問題を引き起こし、本発明の特徴とするフィルムが得られにくい場合がある。本発明の目的とする顕微ラマン結晶化指数を得るために、好ましくは、130～160°C、さらに好ましくは135～145°Cで、好ましくは、1. 4～2. 0倍、より好ましくは1. 6～1. 8倍で再縦延伸することが好ましい。特に、延伸温度が130°Cよりも低いとフィルムが破断する場合がある。

一方、延伸温度が、160°Cよりも高いとフィルム表面が熱によるダメージを受けるため好ましくない。また、延伸倍率が、1.4倍よりも低いと十分なテープ強度が得られない場合があり、2.0倍よりも大きいとフィルムが破断する場合がある。その後、例えば、1.0～1.5倍再横延伸した後、好ましくは、205～235°C、より好ましくは210～220°Cで、好ましくは、0.5～20秒、より好ましくは1～15秒熱固定を行う。特に熱固定温度が205°Cよりも低くなるとフィルムの結晶化が進まないために構造が安定せず、高温保管や熱負荷時に微小平面性が悪化する場合がある。一方、235°Cよりも大きくなると、ポリエステル非晶鎖部分の緩和が進み、ヤング率が小さくなる場合がある。また本発明の目的を達成するためには、フィルム上下の温度差が、好ましくは、20°C以下、より好ましくは10°C以下、更に好ましくは5°C以下である。フィルム上下での温度差が20°Cよりも大きいと、厚み方向での顕微ラマン結晶化指数が均一にならず、熱負荷時に微小平面性の悪化を引き起す場合がある。その後、長手及び／又は幅方向に0.5～7.0%の弛緩処理を施すことが好ましい。

### 実施例

[0046] 以下、実施例で本発明を詳細に説明する。

[0047] 本発明の特性値の測定方法、並びに効果の評価方法は次の通りである。

#### A. 粒子の平均粒径

フィルムからポリマをプラズマ低温灰化処理法で除去し、粒子を露出させた。処理条件は、ポリマは灰化されるが粒子は極力ダメージを受けない条件を選択した。その粒子を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察し、粒子画像をイメージアナライザで処理した。SEMの倍率はおよそ5,000～20,000倍から適宜選択した。観察箇所をかえて粒子数5,000個以上で粒径とその体積分率から、次式で体積平均径dを得た。粒径の異なる2種類以上の粒子を含有している場合には、それぞれの粒子について同様の測定を行い、粒径を求めた。

$$d = \sum (d_i \cdot N_{Vi})$$

ここで、 $d_i$ は粒径、 $N_{Vi}$ はその体積分率である。粒子がプラズマ低温灰化処理法で大幅にダメージを受ける場合には、フィルム断面を透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて、3,000～100,000倍で観察した。TEMの切片厚さは約100nmとし、場所をか

えて500視野以上測定し、上記式から体積平均径dを求めた。

#### B. 粒子の体積形状係数

走査型電子顕微鏡で、粒子の写真を例えば5,000倍で10視野撮影した。さらに、画像解析処理装置を用いて、投影面最大径および粒子の平均体積を算出し、下記式により体積形状係数を得た。

$$[0048] \quad f = V / Dm^3$$

ここで、Vは粒子の平均体積( $\mu m^3$ )、Dmは投影面の最大径( $\mu m$ )である。

#### C. フィルム積層厚み

表面からエッティングしながらXPS(X線光電子光法)、IR(赤外分光法)あるいはコントローカル顕微鏡などで、その粒子濃度のデプスプロファイルを測定した。片面に積層したフィルムにおける表層では、表面という空気-樹脂の界面のために粒子濃度は低く、表面から遠ざかるにつれて粒子濃度は高くなる。本発明の片面に積層したフィルムの場合は、深さ[I]で一旦極大値となった粒子濃度がまた減少し始める。この濃度分布曲線をもとに極大値の粒子濃度の1/2になる深さ[II](ここで、II>I)を積層厚さとした。

[0049] さらに、無機粒子などが含有されている場合には、二次イオン質量分析装置(SIMS)を用いて、フィルム中の粒子のうち最も高濃度の粒子の起因する元素とポリエチレンの炭素元素の濃度比(M+ / C+)を粒子濃度とし、層(A)の表面からの深さ(厚さ)方向の分析を行った。そして上記同様の手法から積層厚さを得た。

#### D. 顕微ラマン結晶化指数

試料をエポキシ樹脂に包埋し、研磨を行って断面を出した。平面方向に異なる5ヶ所において、厚み方向に1  $\mu m$ 毎(6  $\mu m$ のフィルムであれば6点、4.5  $\mu m$ のフィルムであれば4点)に顕微ラマン結晶化指数を測定し、同じ厚み方向位置の平均値を計算し、その値から最大値、最小値及び最大値と最小値の差を計算した。平面方向は断面を切り出した後フィルム表面から深さ1  $\mu m$ までの領域を長手及び幅方向に2 mmおきに各6点(1/2インチ テープ幅相当)計12点をレーザーラマンマイクロプローブ法(空中分解能1  $\mu m$ )により下記条件で測定し、ばらつきを計算した。1730cm<sup>-1</sup>(カルボニル基の伸縮振動)の半値幅を顕微ラマン結晶化指数 Ic、最大値と最小

値の差を $\Delta I_c$ とした。

[0050] レーザーラマン分光の測定条件は次の通りである。

装置 ; Jobin Yvon社製 Ramanor U-1000

マイクロプローブ; 頸微鏡 Olympus BH-2型

Beam Splitter ;右

対物レンズ ; $\times 100$

光源 ; Ar<sup>+</sup>レーザー、NEC GLG3300、波長 514. 5nm

分光器; 構成 1m Czerny - Turner型

Double Monochromator

回折格子 Plane Holographic、

1, 800g/mm、

110×110mm

分散 9. 23cm<sup>-1</sup>/mm

逆光除去率 10<sup>-14</sup>(20cm<sup>-1</sup>)

検出器; PM RCA31034、浜松電子製943-02

MCD DARSS TN-6122(Tracor Northern)

#### E. フィルムのヤング率

JIS-K7127の方法に従い、インストロンタイプの引張試験機を用いて23°C、65%RHにてヤング率を測定した。フィルムの縦方向(MD)および幅方向(TD)に切り出した幅10mm、長さ100mmの試料フィルムを引っ張り測定した。

#### F. 温度膨張係数

フィルムを幅4mmにサンプリングし、試長15mmになるように真空理工(株)製TM-A TM-3000および加熱制御部TA-1500にセットした。0. 5gの荷重をフィルムにかけて、温度を室温(23°C)から50°Cまで上昇させた後、一旦室温まで温度を戻した。その後、再度温度を室温から50°Cまで上昇させた。その時の30°Cから40°Cまでのフィルムの変位量( $\Delta L_{mm}$ )を測定し、次式から温度膨張係数を算出した。

[0051] 温度膨張係数(／°C) = ( $\Delta L / 15$ ) / (40-30))

#### G. 湿度膨張係数

フィルムを幅10mmにサンプリングし、試長200mmになるように大倉インダストリー製のテープ伸び試験器にセットし、温度30°C、湿度40%RHから80%RHまで変化させ30分保持した後、変位量( $\Delta L_{mm}$ )を測定し、次式から湿度膨張係数を算出した。

$$[0052] \text{ 湿度膨張係数} (\text{／\%RH}) = (\Delta L / 200) / (80 - 40)$$

#### H. 熱収縮率

フィルムを長手及び幅方向に幅10mm、長さ250mmに切り出し、約200mmの間隔で2本の標線を入れ、その間隔を23°Cで測定する(これをXmmとする)。この試料の先端に0.15gの荷重をかけた状態で100°C雰囲気中30分間放置した後の標線間の間隔を再度23°Cで測定し(これをYmmとする)、 $100 \times (X - Y) / X$ をもって熱収縮率とした。

#### I. 寸法変化率

フィルムを長手方向 100mm、幅方向 30mmに切り出し、23°C、65%RH無荷重の条件下にて、24時間調湿調温した後、大日本印刷(株)製クロムマスク上に、サンプルを静電気により貼り付け、光学顕微鏡を用いて幅方向の長さ(L0)を測定する。その後、49°C、90%RHの条件下、長手方向に32MPaの荷重をかけた状態で、72時間放置した。72時間後、荷重を解放し、23°C、65%RH、無荷重の条件下にて24時間調湿調温後、幅方向の長さ(L1)を測定した。幅方向の寸法変化率は下記式により求めた。

$$\text{幅方向の寸法変化率} (\%) = [(L1 - L0) / L0] \times 100$$

#### J. 延伸ロールの表面粗さ

Mitutoyo(株)製の表面粗さ計サーフテスト301を使用して、カットオフ0.25mmにてロール幅方向3点において中心面平均粗さを測定し、その平均値を採用した。

#### K. 温熱処理による微小平面性の評価

フィルムを100°Cのオーブンに24時間放置することにより熱処理を行った。熱処理前後の層(A)の微小平面性をWYKO社製 非接触3次元粗さ計TOPO-3Dを用いて、測定面積倍率41.6倍、測定面積  $239 \times 239 \mu m (0.057 mm^2)$ で測定した。該粗さ計に内蔵された表面解析ソフト(ver. 4.90)により、空間周波数 $10 cm^{-1}$ と2

$00\text{cm}^{-1}$ におけるRelative Powerを求めた。測定は10回行い、平均値をもってRelative Powerの値とした。WRaは熱処理前フィルムのみ測定した。

[0053] なお、Relative Powerは、各空間周波数におけるパワースペクトラム $P(f_x, f_y)$ を対数スケール(dB)で表した値であり、 $P(f_x, f_y) 1\text{nm}^2$ の表面うねりを0dBと表記するように解析ソフト中で基準化されている。xをフィルム幅方向、yをフィルム長手方向として測定した。 $P(f_x, f_y)$ は、それぞれ下記式により計算される。

[0054] [数1]

$$P(f_x, f_y) = \frac{1}{A} \{FT[h(x, y)]\}^2$$

[0055] 式中、 $P(f_x, f_y)$ はパワースペクトラムであり、Aは測定面積、FTは $\iint h(x, y) \exp[i2\pi(x \cdot f_x + y \cdot f_y)]$ で表されるフーリエ変換の演算、 $h(x, y)$ は表面形状データ、 $f_x, f_y$ は空間上の周波数座標である。

[0056] [数2]

$$WRa = \frac{1}{MN} \sum_{k=1}^M \sum_{j=1}^N |Z_{jk} - \bar{Z}|$$

$$\text{ここで、 } \bar{Z} = \frac{1}{MN} \sum_{k=1}^M \sum_{j=1}^N |Z_{jk}|$$

[0057] また、 $Z_{jk}$ は、測定方向とそれと直交する方向をそれぞれM, N分割したときの各方向のj番目、k番目の位置における3次元粗さチャート上の高さである。

[0058] 空間周波数10(1/mm)及び、10(1/mm)と200(1/mm)の強度差を読み取り、それぞれ $I^{10}\text{TD}$ 、 $I^{10-200}\text{TD}$ と表す。この値は、フィルム表面の微小平面性の度合

いを示しており、値がプラス側に大きいほど微小平面性が悪い。測定機器はWYKOに特定するものではなく、同様の測定が可能な非接触3次元粗さ計ZYGOや、原子間力顕微鏡AFMを用いても良い。

#### K. 微小平面性の評価

熱処理前後の $I^{10-200}$ TDの差が大きいほど熱処理により微小平面性が悪化したことを見すため、下記基準で評価した。

[0059]	熱処理前後の $I^{10-200}$ TDの差が0以上2dB未満	: ○○
	熱処理前後の $I^{10-200}$ TDの差が2以上4dB未満	: ○
	熱処理前後の $I^{10-200}$ TDの差が4dB以上	: ×

○○及び○を合格とした。

#### 実施例1

平均粒径0.06 μm、体積形状係数f=0.51の球状シリカ粒子を含有するポリエチレンテレフタレートと実質上粒子を含有しないポリエチレンテレフタレートのペレットを作り、球状シリカ粒子の含有量が0.2重量%となるよう2種のペレットを混合することにより熱可塑性樹脂Aを調製した。また、平均粒径0.3 μm、体積形状係数f=0.52のジビニルベンゼン／スチレン共重合架橋粒子を含有するポリエチレンテレフタレートと、平均粒径0.8 μm、体積形状係数f=0.52のジビニルベンゼン／スチレン共重合架橋粒子を含有するポリエチレンテレフタレート、および実質上粒子を含有しないポリエチレンテレフタレートのペレットを、0.3 μmの粒子含有量が0.26重量%、0.8 μmの粒子含有量が0.01重量%となるよう混合した熱可塑性樹脂Bを調製した。

- [0060] これらの熱可塑性樹脂をそれぞれ160°Cで8時間減圧乾燥した後、別々の押出機に供給し、275°Cで溶融押出して高精度濾過した後、矩形の2層用合流ブロックで合流積層し、2層積層とした。その後、285°Cに保ったスリットダイを介し冷却ロール上に静電印加キャスト法を用いて表面温度25°Cのキャスティングドラム巻き付けて冷却固化し未延伸積層フィルムを得た。
- [0061] この未延伸積層フィルムをリニアモーター式の同時二軸延伸機により95°Cで長手及び幅方向にそれぞれ3.5倍、トータルで12.3倍延伸しその後、再度180°Cで1.

5倍長手方向に延伸し、定長下で220°Cで3秒間熱処理した。フィルムとシャッターの距離を20mm、フィルム上下の温度差を1°Cとした。その後長手方向に1%、幅方向に2%の弛緩処理を施し、総厚み6 μm、層(B)の厚み0.5 μmのフィルム原反を得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 実施例2

層(A)、層(B)に添加する粒子の粒径( $f=0.52$ )、添加量、長手及び幅方向の倍率、及びフィルム上下の温度差を10°Cに変更する以外は実施例1と同様にして二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 実施例3

平均粒径0.10 μm、体積形状係数 $f=0.51$ の球状シリカ粒子を含有するポリエチレンテレフタレートと実質上粒子を含有しないポリエチレンテレフタレートのペレットを作り、球状シリカ粒子の含有量が0.1重量%となるよう2種のペレットを混合することにより熱可塑性樹脂を調製し、5 μmの単層フィルムとする以外は実施例1と同様にして二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 実施例4

熱固定温度を240°Cとする以外は、実施例1と同様にして二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 実施例5

層(A)に添加する粒子の添加量、及び層(A)、層(B)の厚みを変更する以外は実施例1と同様にして未延伸積層フィルムを作成し、逐次二軸延伸法により延伸した。まず延伸温度110°Cで2段階に分けて長手方向に3.1倍延伸した。このとき接触する延伸ロールには表面粗さRaが0.40 μmの非粘着性のシリコーンロールを用い、更にニップロール間で平行に延伸した。この時、ニップ部分におけるフィルムとロールの接触距離は4mm、フィルムとロールの接触時間は、1段目0.011秒、2段目0.009秒、トータル0.02秒とした。その後、この一軸延伸フィルムをテンタにより温度95°Cで幅方向に3.2倍延伸した後、140°Cで1.7倍再縦延伸し、定長下で210°Cで

3秒間熱処理した。フィルム上下の温度差は1°Cとした。その後幅方向に2%の弛緩処理を施し、総厚み4.5 μm、層(B)の厚み0.4 μmのフィルム原反を得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 実施例6

層(B)に添加する粒子の粒径、添加量、フィルムとロールの接触時間を1段目0.022秒、2段目0.018秒、トータル0.04秒に変更する以外は、実施例4と同様にして二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 比較例1

延伸温度を125°C、延伸ロールに表面粗さが0.6 μmのセラミックスロールを用い、フィルム上下の温度差を10°Cとする以外は実施例4と同様にして二軸配向ポリエス

テルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 比較例2

延伸温度を125°C、延伸ロールに表面粗さが0.6 μmのセラミックスロールを用い、さらにフィルムをロールに巻き付けて延伸することでフィルムとロールの接触時間を1段目0.40秒、2段目0.29秒、トータル0.69秒とする以外は実施例4と同様にして二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

#### 比較例3

長手及び幅方向の延伸倍率を変更し、熱固定温度を200°C、フィルムとシャッターの距離を250mm、フィルム上下の温度差を30°Cとする以外は、実施例2と同様にして二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの評価結果は表1, 2, 3のとおりであった。

[0062] [表1]

フィルム厚み	層(A)				層(B)				延伸方法			
	総厚み[μm]	$t_B[\mu m]$	$t_B/d_{II}[\mu m]$	不活性粒子 I $d_I[\mu m]$	濃度[重量%]	WRa <sup>A</sup> [nm]	不活性粒子 II $d_{II}[\mu m]$	濃度[重量%]				
実施例1	6.0	0.5	0.63	0.06	0.2	0.8	0.8	0.01	0.3	0.26	4.4	同時二軸
実施例2	6.0	0.5	0.63	0.3	0.1	4.5	0.8	0.05	0.3	0.60	6.8	同時二軸
実施例3	5.0	—	—	0.1	0.1	2.5	—	—	—	—	—	同時二軸
実施例4	6.0	0.5	0.63	0.06	0.2	0.7	0.8	0.01	0.3	0.26	4.5	同時二軸
実施例5	4.5	0.4	0.50	0.06	0.05	0.7	0.8	0.01	0.3	0.26	4.3	逐次二軸
実施例6	4.5	0.4	1.33	0.06	0.05	0.7	0.3	0.01	0.06	0.10	2.8	逐次二軸
比較例1	4.5	0.4	0.50	0.06	0.05	1.0	0.8	0.01	0.3	0.26	4.4	逐次二軸
比較例2	4.5	0.4	0.50	0.06	0.05	1.4	0.8	0.01	0.3	0.26	4.4	逐次二軸
比較例3	6.0	0.5	0.63	0.3	0.1	4.7	0.8	0.05	0.3	0.60	7.0	同時二軸

[0063] [表2]

フィルム物性							熱収縮率			
	長手方向 ヤング率[MPa]	幅方向 ヤング率[MPa]	長手/幅 ヤング率[MPa]	長手+幅 ヤング率[MPa]	温度膨張係数[10 <sup>-6</sup> /°C]	温度膨張係数[10 <sup>-6</sup> /°RH]	幅方向の寸法変化率[%]	熱収縮の和 [%]	長手方向[%]	幅方向[%]
実施例1	8200	4200	2.0	12400	9	10	-0.18	1.8	1.7	0.1
実施例2	5000	7000	0.7	12000	-1	6	-0.40	2.1	1.7	0.4
実施例3	8300	4100	2.0	12400	10	10	-0.18	1.8	1.7	0.1
実施例4	7100	3700	1.9	10800	14	14	-0.26	0.9	1.2	-0.3
実施例5	8300	4200	2.0	12500	10	10	-0.20	2.1	2.1	0.0
実施例6	8200	4200	2.0	12400	10	11	-0.20	2.1	2.0	0.1
比較例1	8200	4200	2.0	12400	10	10	-0.20	2.1	2.1	0.0
比較例2	8200	4200	2.0	12400	10	10	-0.20	1.8	1.7	0.1
比較例3	5100	4400	1.2	9500	11	11	-0.40	2.3	1.6	0.7

[0064] [表3]

顯微ラマン結晶化指數				空間周波数					
厚み方向		平面方向		熱処理前フィルム		熱処理後フィルム			
最大値 [cm <sup>-1</sup> ]	最小値 [cm <sup>-1</sup> ]	△Ic厚み方向	△Ic平面方向	I <sup>10</sup> <sub>TD</sub>	I <sup>10-200</sup> <sub>TD</sub>	I <sup>10</sup> <sub>TD</sub>	I <sup>10-200</sup> <sub>TD</sub>		
実施例1	13.7	13.5	0.2	0.3	-13.5	11.5	-13.0	12.0	OO(0.5dB)
実施例2	14.0	13.4	0.6	0.4	-2.8	12.0	-1.0	14.0	O(2.0dB)
実施例3	13.6	13.4	0.2	0.3	-5.7	13.3	-5.0	14.0	OO(0.7dB)
実施例4	12.9	12.7	0.2	0.2	-13.4	11.5	-13.0	11.9	OO(0.4B)
実施例5	13.9	13.2	0.7	0.5	-11.3	13.7	-8.0	17.0	O(3.3dB)
実施例6	13.9	13.1	0.8	0.6	-11.0	14.0	-7.5	17.5	O(3.5dB)
比較例1	14.5	13.3	1.2	1.4	-2.8	21.7	2.5	26.8	x (5.1dB)
比較例2	15.1	13.3	1.8	2.3	-0.5	24.0	5.5	30.0	x (6.0dB)
比較例3	16.0	14.8	1.2	0.5	-3.2	11.8	1.1	16.1	x (4.2dB)

## 産業上の利用可能性

[0065] 本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、磁気記録材料、電子材料、製版フィルム、昇華型リボン、包装材料に用いられるポリエスチルフィルムとして有用である。特に、本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、高密度磁気記録媒体、特にリニア記録方式である重層メタル塗布型デジタル記録媒体用ベースフィルムとして用いたときに有用な二軸配向ポリエスチルフィルムである。

[0066] 本発明の二軸配向ポリエスチルフィルムは、高温保管や加工時の熱負荷後も微小平面性が良好なフィルムである。

## 請求の範囲

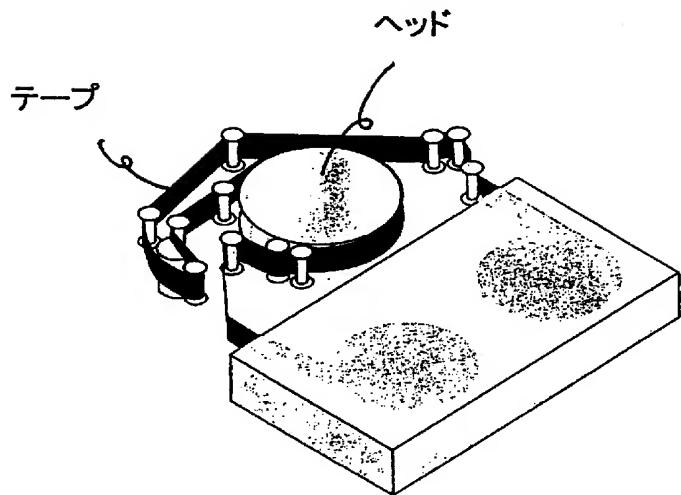
- [1] フィルム厚み方向の顕微ラマン結晶化指数Icが、 $8\text{cm}^{-1}\sim 15\text{cm}^{-1}$ 、Icの最大値と最小値の差が、 $1\text{cm}^{-1}$ 以下である二軸配向ポリエステルフィルム。
- [2] フィルム平面方向の顕微ラマン結晶化指数Icの最大値と最小値の差が、 $1\text{cm}^{-1}$ 以下である請求項1に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [3]  $100^\circ\text{C}$ で24時間の熱処理を施したポリエステルフィルムの少なくとも片面の幅方向における空間周波数( $1/\text{mm}$ )のRelative Power  $I_{\text{TD}}^{10}$ が、 $-25\sim 0\text{dB}$ である二軸配向ポリエステルフィルム。
- [4] 少なくとも片面の幅方向における空間周波数10と200( $1/\text{mm}$ )のRelative Powerの強度差 $I_{\text{TD}}^{10-200}$ が、 $5\sim 20\text{dB}$ である請求項3記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [5] 長手方向のヤング率と幅方向のヤング率の和が、 $11,000\sim 15,000\text{MPa}$ である請求項1または3に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [6] ポリエステルがポリエチレンテレフタレートである請求項1または3に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [7] リニア記録方式の磁気記録媒体用ベースフィルムとして用いられる請求項1または3に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [8] 重層メタル塗布型デジタル記録方式の磁気記録媒体用ベースフィルムとして用いられる請求項1または3に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

	フィルム厚み			層(A)			層(B)					
	総厚み [ $\mu$ m]	$t_b$ [ $\mu$ m]	$t_b/d_{II}$	不活性粒子 I $d_I$ [ $\mu$ m]	濃度 [%] [重量]	WR <sup>A</sup> [nm]	不活性粒子 II $d_{II}$ [ $\mu$ m]	濃度 [%] [重量]	不活性粒子 III $d_{III}$ [ $\mu$ m]	濃度 [%] [重量]	WR <sup>B</sup> [nm]	延伸方法
実施例1	6.0	0.5	0.63	0.06	0.2	0.8	0.8	0.01	0.3	0.26	4.4	同時二軸
実施例2	6.0	0.5	0.63	0.3	0.1	4.5	0.8	0.05	0.3	0.60	6.8	同時二軸
実施例3	5.0	—	—	0.1	0.1	2.5	—	—	—	—	—	同時二軸
実施例4	6.0	0.5	0.63	0.06	0.2	0.7	0.8	0.01	0.3	0.26	4.5	同時二軸
実施例5	4.5	0.4	0.50	0.06	0.05	0.7	0.8	0.01	0.3	0.26	4.3	逐次二軸
実施例6	4.5	0.4	1.33	0.06	0.05	0.7	0.3	0.01	0.06	0.10	2.8	逐次二軸
比較例1	4.5	0.4	0.50	0.06	0.05	1.0	0.8	0.01	0.3	0.26	4.4	逐次二軸
比較例2	4.5	0.4	0.50	0.06	0.05	1.4	0.8	0.01	0.3	0.26	4.4	逐次二軸
比較例3	6.0	0.5	0.63	0.3	0.1	4.7	0.8	0.05	0.3	0.60	7.0	同時二軸

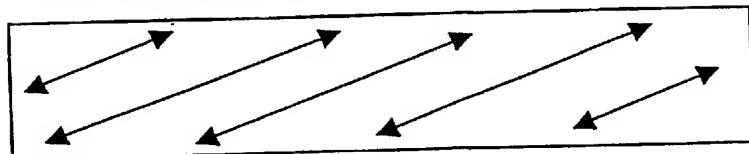
フィルム物性							熱収縮率			
	長手方向 ヤング率 [MPa]	幅方向 ヤング率 [MPa]	長手/幅 ヤング率	長手+幅 ヤング率 [MPa]	温度膨張 係数 [10 <sup>-6</sup> /°C]	湿度膨張 係数 [10 <sup>-6</sup> /%RH]	幅方向の 寸法変化 率[%]	熱収縮 の和 [%]	長手方向 [%]	幅方向 [%]
実施例1	8200	4200	2.0	12400	9	10	-0.18	1.8	1.7	0.1
実施例2	5000	7000	0.7	12000	-1	6	-0.40	2.1	1.7	0.4
実施例3	8300	4100	2.0	12400	10	10	-0.18	1.8	1.7	0.1
実施例4	7100	3700	1.9	10800	14	14	-0.26	0.9	1.2	-0.3
実施例5	8300	4200	2.0	12500	10	10	-0.20	2.1	2.1	0.0
実施例6	8200	4200	2.0	12400	10	11	-0.20	2.1	2.0	0.1
比較例1	8200	4200	2.0	12400	10	10	-0.20	2.1	2.1	0.0
比較例2	8200	4200	2.0	12400	10	10	-0.20	1.8	1.7	0.1
比較例3	5100	4400	1.2	9500	11	11	-0.40	2.3	1.6	0.7

	顎微ラマン結晶化指數				空間周波数			
	厚み方向		平面方向		熱処理前フィルム		熱処理後フィルム	
	最大値 [cm <sup>-1</sup> ]	最小値 [cm <sup>-1</sup> ]	$\Delta I_c$ 厚み方向	平面方向	$I_{TD}^{10}$	$I_{TD}^{10-200}$	$I_{TD}^{10-200}$	100°C x 24hr
実施例1	13.7	13.5	0.2	0.3	-13.5	11.5	-13.0	OO(0.5dB)
実施例2	14.0	13.4	0.6	0.4	-2.8	12.0	-1.0	O(2.0dB)
実施例3	13.6	13.4	0.2	0.3	-5.7	13.3	-5.0	OO(0.7dB)
実施例4	12.9	12.7	0.2	0.2	-13.4	11.5	-13.0	OO(0.4dB)
実施例5	13.9	13.2	0.7	0.5	-11.3	13.7	-8.0	17.0
実施例6	13.9	13.1	0.8	0.6	-11.0	14.0	-7.5	17.5
比較例1	14.5	13.3	1.2	1.4	-2.8	21.7	2.5	O(3.5dB)
比較例2	15.1	13.3	1.8	2.3	-0.5	24.0	5.5	x(5.1dB)
比較例3	16.0	14.8	1.2	0.5	-3.2	11.8	1.1	x(6.0dB)
								x(4.2dB)

[図1]  
ヘリカル記録方式

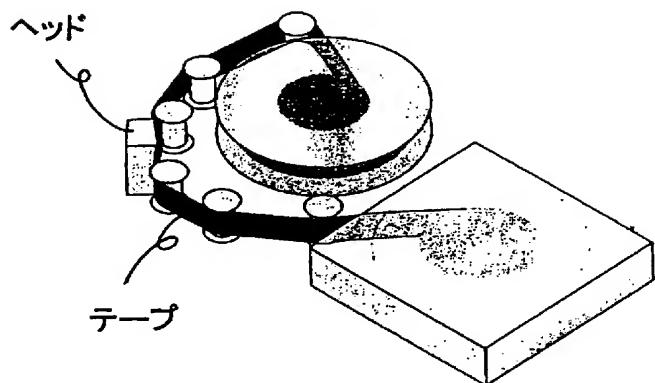


ヘッド走行方向

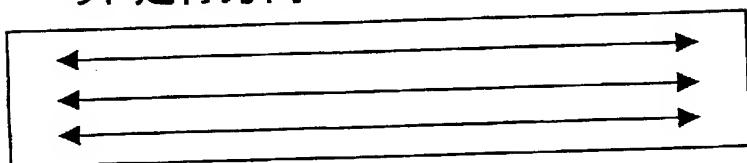


[図2]

## リニア記録方式



ヘッド走行方向



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002398

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

Int.Cl<sup>7</sup> C08J5/18, B32B27/36, B29C55/12, G11B5/73//C08L67:02, B29K67:00,  
B29L7:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08J5/18, B32B27/36, B29C55/12, G11B5/73, C08L67/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 08-281794 A (Toray Industries, Inc.), 29 October, 1996 (29.10.96), Claims; page 2, Par. No. [0004]; pages 5 to 6, Par. Nos. [0029] to [0034] & EP 676269 A2 Page 2, lines 11 to 17; page 7, line 26 to page 8, line 26 & CN 1112872 A & DE 69521732 E & KR 347345 B & TW 333546 A & US 5654394 A	1-8
Y	JP 11-115043 A (Toray Industries, Inc.), 27 April, 1999 (27.04.99), Claims; page 4, Par. Nos. [0019] to [0021] (Family: none)	1-8

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&"	document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
17 March, 2005 (17.03.05)

Date of mailing of the international search report  
05 April, 2005 (05.04.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002398

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2001-058345 A (Toray Industries, Inc.), 06 March, 2001 (06.03.01), Claims; pages 3 to 4, Par. Nos. [0017] to [0022] (Family: none)	1-8
Y	JP 05-212788 A (Toray Industries, Inc.), 24 August, 1993 (24.08.93), Claims; page 3, Par. No. [0015]; page 4, Par. Nos. [0025] to [0026] (Family: none)	1-8
Y	JP 06-068449 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 11 March, 1994 (11.03.94), Claims; pages 5 to 6, Par. Nos. [0025] to [0026] & US 5415933 A Column 9, line 41 to column 11, line 7	1-8
Y	JP 08-337664 A (Toray Industries, Inc.), 24 December, 1996 (24.12.96), Claims; page 4, Par. Nos. [0030], [0032]; page 5, Par. Nos. [0035], [0038] (Family: none)	1-8
Y	JP 2000-062019 A (Toray Industries, Inc.), 29 February, 2000 (29.02.00), Claims; page 3, Par. No. [0014]; pages 3 to 4, Par. Nos. [0018] to [0021] (Family: none)	1-8
Y	JP 2002-329312 A (Toray Industries, Inc.), 15 November, 2002 (15.11.02), Claims (Family: none)	1-8
Y	JP 2003-067913 A (Teijin Dupont Film Kabushiki Kaisha), 07 March, 2003 (07.03.03), Claims; page 9, Par. No. [0062] (Family: none)	1-8
A	JP 2002-050021 A (Sony Corp.), 15 February, 2002 (15.02.02), Claims (Family: none)	1-8
A	JP 2004-004481 A (Ricoh Co., Ltd.), 08 January, 2004 (08.01.04), Claims (Family: none)	1-8

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/002398

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004-261987 A (Teijin Ltd.), 24 September, 2004 (24.09.04), Claims (Family: none)	1-8

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/002398

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The crystallization index in thickness direction recited in claim 1 and the power value at given space frequency in width direction recited in claim 3 cannot be stated as being identical technical matters judging from the contents thereof. Consequently, from these matters, it does not appear that claims 1 and 3 are in a relationship sharing novel technical feature. Further, it also does not appear that these matters are those having been recognized as having close relationship by persons skilled in the art to which the invention pertains in the field of biaxially oriented polyester at the time of filing of this application. Therefore, these inventions are not in relationship (continued to extra sheet)

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/002398

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

sharing a special technical feature within the meaning of PCT Rule 13.2,  
and accordingly cannot be stated as constituting a group of inventions  
linked with each other so as to form a single general inventive concept.

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int. C1' C08J 5/18 B32B27/36 B29C55/12 G11B5/73  
 // C08L67:02 B29K67:00 B29L 7:00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int. C1' C08J 5/18 B32B27/36 B29C55/12 G11B5/73  
 C08L67/02

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

## 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 08-281794 A (東レ株式会社) 1996. 10. 2 9, 特許請求の範囲, 第2頁【0004】 , 第5-6頁【002 9】-【0034】&EP 676269 A2, 第2頁第11-1 7行, 第7頁第26行-第8頁第26行&CN 1112872 A &DE 69521732 E&KR 347345 B&TW 33 3546 A&US 5654394 A	1-8

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

17. 03. 2005

## 国際調査報告の発送日

05. 4. 2005

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官（権限のある職員）

天野 宏樹

4 J 9272

電話番号 03-3581-1101 内線 3456

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 11-115043 A (東レ株式会社) 1999. 04. 27, 特許請求の範囲, 第4頁【0019】-【0021】(ファミリーなし)	1-8
Y	J P 2001-058345 A (東レ株式会社) 2001. 03. 06, 特許請求の範囲, 第3-4頁【0017】-【0022】(ファミリーなし)	1-8
Y	J P 05-212788 A (東レ株式会社) 1993. 08. 24, 特許請求の範囲, 第3頁【0015】，第4頁【0025】-【0026】(ファミリーなし)	1-8
Y	J P 06-068449 A (富士写真フィルム株式会社) 1994. 03. 11, 特許請求の範囲, 第5-6頁【0025】-【0026】&US 5415933 A, 第9欄第41行-第11欄第7行	1-8
Y	J P 08-337664 A (東レ株式会社) 1996. 12. 24, 特許請求の範囲, 第4頁【0030】，【0032】，第5頁【0035】，【0038】(ファミリーなし)	1-8
Y	J P 2000-062019 A (東レ株式会社) 2000. 02. 29, 特許請求の範囲, 第3頁【0014】，第3-4頁【0018】-【0021】(ファミリーなし)	1-8
Y	J P 2002-329312 A (東レ株式会社) 2002. 11. 15, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-8
Y	J P 2003-067913 A (帝人デュポンフィルム株式会社) 2003. 03. 07, 特許請求の範囲, 第9頁【0062】(ファミリーなし)	1-8
A	J P 2002-050021 A (ソニー株式会社) 2002. 02. 15, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-8
A	J P 2004-004481 A (株式会社リコー) 2004. 01. 08, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-8
A	J P 2004-261987 A (帝人株式会社) 2004. 09. 24, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-8

**第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）**

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

**第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）**

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求項1の厚み方向の結晶化指数と、請求項3の幅方向の特定空間周波数におけるパワー値とは、その内容から判断して同一の技術的事項であるとは言えないから、これらの点が請求項1と3とが新規な技術的特徴を共有する関係にあるとは認められない。また、これらの事項が二軸配向ポリエスチルの分野で、本出願時に密接な関連性があるものとして当業者に認識されていた事項であるとも認められない。よって、上記各発明は、PCT規則13.2の特別な技術的特徴を共有する関係にないので、单一の一般的発明概念を形成するように連関している一群の発明とは言えない。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。